

WO0151992

Publication Title:

**METHOD FOR PRODUCING ARTICLE COATED WITH PATTERNED FILM
AND PHOTSENSITIVE COMPOSITION**

Abstract:

Abstract of WO0151992

A method for producing an article coated with a patterned film which comprises applying a photosensitive composition comprising an organic metal or silicon compound having photosensitivity and a metal or silicon alkoxide having hydrolizability on a substrate, exposing the substrate to the radiation with a light to effect the polymerization of the exposed portion of the applied coating film, and then removing through dissolving the unexposed portion of the film, wherein the organic metal or silicon compound is a metal or silicon oxide containing an allyl group; and the above-described photosensitive composition. The article coated with a patterned film produced by the method has a pattern from which an unexposed film has been completely removed by the development after radiation with a light, e58 and thus is excellent in the accuracy of patterning. Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

Courtesy of <http://v3.espacenet.com>

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 7 月 19 日 (19.07.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/51992 A1

- (51) 国際特許分類: G03F 7/075, 7/027, [JP/JP]; 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7
C08L 83/04, 85/00, G02B 5/18, 3/00 番28号 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/09382 (71) 出願人 および
(72) 発明者: 南 努 (MINAMI, Tsutomu) [JP/JP]; 〒589-
(22) 国際出願日: 2000 年 12 月 28 日 (28.12.2000) 0023 大阪府大阪狭山市大野台2丁目7番1号 Osaka (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 辰巳砂昌弘 (TAT-
(26) 国際公開の言語: 日本語 SUMISAGO, Masahiro) [JP/JP]; 〒599-8126 大阪府堺
市大東野128-16 Osaka (JP). 忠永清治 (TADANAGA,
(30) 優先権データ: Kiyoharu) [JP/JP]; 〒591-8023 大阪府堺市中区百舌鳥町6
丁目998-3 Osaka (JP). 松田厚範 (MATSUDA, Atsunori)
特願2000-2881 2000 年 1 月 11 日 (11.01.2000) JP [JP/JP]; 〒586-0082 大阪府河内長野市緑ヶ丘中町12-5
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本板 Osaka (JP). 河津光宏 (KAWADU, Mitsuhiro) [JP/JP]. 中
硝子株式会社 (NIPPON SHEET GLASS CO., LTD.) 村浩一郎 (NAKAMURA, Koichiro) [JP/JP]. 山本博章

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING ARTICLE COATED WITH PATTERNED FILM AND PHOTSENSITIVE COMPOSITION

(54) 発明の名称: パターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成物

(57) Abstract: A method for producing an article coated with a patterned film which comprises applying a photosensitive composition comprising an organic metal or silicon compound having photosensitivity and a metal or silicon alkoxide having hydrolyzability on a substrate, exposing the substrate to the radiation with a light to effect the polymerization of the exposed portion of the applied coating film, and then removing through dissolving the unexposed portion of the film, wherein the organic metal or silicon compound is a metal or silicon oxide containing an allyl group; and the above-described photosensitive composition. The article coated with a patterned film produced by the method has a pattern from which an unexposed film has been completely removed by the development after radiation with a light, and thus is excellent in the accuracy of patterning.

(57) 要約:

成膜性が優れ、光照射後の現像において光未照射部の膜を完全に除去することができ、パターン精度に優れたパターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成物を提供する。

感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法であり、前記有機金属もしくはケイ素化合物としてアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドを用いてパターン膜被覆物品を製造する方法である。

WO 01/51992 A1



(YAMAMOTO, Hiroaki) [JP/JP]; 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番28号 日本板硝子株式会社 内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 弁理士 大島正孝(OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

パターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成物

5 技術分野

本発明はパターン膜被覆物品の製造方法、特に感光性を有する有機金属化合物を含む感光性組成物を基材上に塗布した後、光照射し重合硬化させた後、光未照射部を取り除くパターン膜被覆物品の製造方法、および感光性組成物に関する。

従来の技術

- 10 従来からパターン膜を形成させるための感光性材料の開発は進められてきており、数多く提案されている。一般的に感光性材料に求められる要求特性としては次のようなものが挙げられる。①照射するエネルギーに対して高感度である。②高解像度である。すなわちパターン精度および加工性が優れている。③基板との密着性が高い。など。これまで感光性を有するゾルゲル材料を用いて金属元素および両性元素の酸化物薄膜のパターンを形成することが試みられている。
- 15

- JOURNAL OF LIGHTWAVE TECHNOLOGY, VOL. 16, No. 9, pp 1640~1646, SEPTEMBER 1998年、SPIE Vol. 3282, 頁17~30、およびSPIE Vol. 3282, 頁50~58には、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジルコニウムアルコキシドおよびアクリル酸などからなる感光性材料を用いて、露光・現像（リーチング）によりグレーティングを有する光導波路素子を作製することが述べられている。
- 20

- しかし、上記方法では、露光後の現像において光未照射部の膜を十分に除去することが困難であるため良好なパターンが得られない。そのために、導波路を作製する場合は導波光が漏れたり、回折格子を作製する場合には回折光の明瞭なパターンは得られずにぼやけたりあるいは回折光同士がつながったりするというような問題があった。
- 25

発明の開示

それ故、本発明の目的は、成膜性が優れ、光照射後の現像において光未照射部の膜を完全に除去することができ（いわゆる「リーチングの切れ」がよく）そしてパターン精度に優れたパターン膜被覆物品を製造するための製造方法およびそのための感光性組成物を提供することにある。

- 5 本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第1に、感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法において、前記有機金属もしくはケイ素化合物はアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドであることの特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法によって達成される。

本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第2に、アリル基を有するトリアルコキシシランを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法により達成される。

- 15 本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第3に、アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、光反応開始剤、重合促進剤および水を主成分とする感光性組成物によって達成される。

発明の好ましい実施態様

- 本発明における感光性組成物で用いられる感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドとして、例えばそれぞれアリル基を含有するケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを挙げることができる。これらの中でアリル基を有するケイ素アルコキシドが好ましく用いられる。アリル基を有するケイ素のアルコキシド（以下、単に「アリルシラン」ということがある）としては、例えばアリルトリメトキシシラン、アリルトリエトキシシランのようなアリル基を有するトリアルコキシシラン；ジアリルジメトキシシラン、ジアリルジエトキシシランのようなジアリルジアルコキシシラン；およびアリルアミノトリメトキシシラン；アリルトリクロロシラン、ジアリルジクロロシランなどのクロロアリルシランなど

が用いられる。それらの中で、アリルトリメトキシシランおよびアリルトリエトキシシランが特に好ましく用いられる。クロロアリルシランは反応時に塩化水素ガスが発生するので、クロロアリルシランを用いる時には作業環境に配慮する必要がある。

- 5 上記感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に5重量%以上であることが好ましく、95.49重量%以下であることが好ましい。

- 本発明における感光性組成物で用いられる加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドとしては、例えばケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジル
10 コニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを挙げることができる。それらの中でケイ素テトラーもしくはトリアルコキシド、チタンテトラーもしくはトリアルコキシドまたはジルコニウムテトラーもしくはトリアルコキシドおよびアルミニウムのトリアルコキシドが好ましく用いられる。上記テトラ
15 エトキシシラン、テトラメトキシシラン、トリブトキシアルミニウム、テトラプロポキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム、テトライソプロポキシチタンおよびテトラブトキシチタン等を挙げることができる。

- そして、ケイ素のトリアルコキシド、チタンのトリアルコキシドまたはジルコ
20 ニウムのトリアルコキシドとしては、例えばメチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシアリルトリアルコキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-(N-アリルアミノ)プロピルトリメトキシシラン、(2-シクロヘキセニル-2-エチル)トリアルコキシシラン、5-(ビシクロヘプテニル)トリア
25 ルコキシシラン、(アクリロキシメチル)フェネチルトリアルコキシシラン、1,1-ビス(トリアルコキシシリルメチル)エチレン、ビス(トリエトキシシリル)エチレン、ビス(トリエトキシシリル)-1,7-オクタンジエン、ブテニルトリエトキシシラン、(3-シクロペンタジエニルプロピル)トリエトキシシラン、

- 5-ヘキセニルトリアルコキシシラン、O-(メタクリロキシエチル)-N-(トリエトキシシリルプロピル)ウレタン、1,7-オクタジエニルトリエトキシシラン、7-オクテニルトリアルコキシシラン、(2,4-ペンタジエニル)トリアルコキシシラン、スチリルエチルトリメトキシシラン、ビニルトリイソプロペノキシシラン；チタンアリルアセトアセテートトリイソプロポキシサイド、チタンメタクリレートトリイソプロポキシサイド、チタンメタクリルオキシエチルアセトアセテートトリイソプロポキシサイド、(2-メタクリルオキシエトキシ)トリイソプロポキシチタネート；ジルコニウムメタクリルオキシエチルアセトアセテートトリイソプロポキシサイドなどを挙げるができる。
- 10 またジ-*s*-ブトキシアルミノキシトリエトキシシランのような金属・ケイ素アルコキシドあるいは異種金属アルコキシドも用いられる。加水分解性金属もしくはケイ素テトラアルコキシドとしては、オリゴマー（例えば平均重合度が5以下のオリゴマー）でもよく、また一部または全部が加水分解していてもよい。ただし、加水分解性金属もしくはケイ素テトラアルコキシドの含有量をモル%または重量%などで表す場合は、そのモノマーまたは加水分解前の物質について表すものとする。
- 15

- これら加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、必要に応じて、アセチルアセトン、メチルアセチルアセトン、エチルアセチルアセトン、ジエチルアセチルアセトンのようなβ-ジケトンなどの配位子でキレート化されていてもよい。
- 20 アセチルアセトンアルミニウムやチタニウムアセチルアセトナートは後述の重合促進剤の作用を兼ね備えている。

- これら加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド中で、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシランおよびテトラブトキシジルコニウムが特に好ましく用いられる。例えばテトラブトキシジルコニウムを使用すると膜の硬度をさらに上げるができる。またジルコニウムアルコキシドやチタンアルコキシドを使用または併用することにより、膜の屈折率を高めて所望の値にすることができる。
- 25

本発明における感光性組成物に上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含ませることにより、強固なネットワークの膜を形成したり、膜の耐薬品性

- を上げたり、膜の耐候性を向上させることができる。これらの加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの量は、あまり多すぎると相対的に前記アシル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの量が低下するので、アシルシランに対して1～50重量%が好ましい。より好ましくは5～40重量%である。上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に1重量%以上であることが好ましく、50重量%以下であることが好ましい。本発明におけるアシルシランとして、例えばアシルトリメトキシシラン、アシルトリエトキシシランのようなアシルトリアルコキシシランが用いられる場合は、感光性組成物中に上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含有させなくてもよい。
- 10 加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含有させない場合、前記アシル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に、96.49重量%以下であることが好ましい。しかし、膜強度をさらに高くしたり、膜の耐薬品性をさらに上げたり、膜の耐候性をさらに向上させる場合には上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを添加することが好ましい。
- 15 本発明における感光性組成物は、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアシル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドを加水分解するための水、ならびに、必要に応じて、前記加水分解を促進するための触媒、光反応開始剤、重合促進剤、溶媒を含有する。水の含有量は、触媒水溶液の水も含めて、必要な化学量論比の0.8～30倍であり、モル比で表して、前記
- 20 加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアシル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して1～20倍が好ましく、より好ましくは2～10倍である。そして感光性組成物中の好ましい水含有量は、好ましくは3～50重量%、より好ましくは5～30重量%である。ただし、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアシル基含有金
- 25 属もしくはケイ素アルコキシドがすでに部分的にまたは全面的に加水分解されているときは、水の含有量はゼロまたは上記よりも少量でよい。

前記触媒は、含有させることが好ましい成分である。触媒としては、例えば塩酸、硝酸 (HNO_3)、硫酸などの無機酸類、酢酸、しゅう酸、蟻酸、プロピオン

- 酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸類が用いられる。触媒の含有量は、酸の種類およびプロトン酸としての強さ（弱酸、強酸）によって異なるが、少なすぎると加水分解・脱水縮合反応の進行が遅くなり、多すぎると縮合反応が進みすぎて分子量が大きくなりすぎ、沈殿物や塗布液のゲル化を生じやすくなるので好ましくない。従って添加する酸触媒の量は、例えば、酸触媒として塩酸を用いる場合については、モル比で表して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.01ミリモル～100ミリモル（0.00001～0.1モル）が好ましく、より好ましくは0.05ミリモル～50ミリモルである。そして感光性組成物中の好ましい酸触媒含有量は、好ましくは0.00002～10重量%、より好ましくは0.0001～1重量%である。ただし、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドまたは感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドがすでに部分的にまたは全面的に加水分解されているときは、酸触媒の含有量はゼロまたは上記よりも少量でよい。
- 15 本発明における感光性組成物で用いられる光反応開始剤は、含有させることが好ましい成分であり、前記感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド中の重合性炭素-炭素二重結合を有するアリル基に光を照射させた際に光重合を開始および促進させるものである。かかる開始剤としては、例えばベンゾフェノン、アセトフェノン、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、過酸化ベンゾイル、1-ヒドロキシシクロヘキシル-1-フェニルケトン（チバガイギー社、「イルガキュア184」）、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン（メルク社、「ダロキュア1173」）、1-(4-イソプロピルフェニル)-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン（メルク社、「ダロキュア1116」）、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン（チバガイギー社、「イルガキュア651」）等が好適に用いられる。
- 20 光反応開始剤の含有量は前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド1モルに対して、0.001～0.2モルであることが好ましい。また感光性組成物中の光反応開始剤の含有量は0.1～20重量%であることが好ましく、さ
- 25

らに好ましくは0.5～10重量%である。

- 本発明で用いられる重合促進剤は、含有させることが好ましい成分であり、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドが加水分解した後に縮重合して、 $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ の結合を形成する
- 5 際の重合促進の触媒としての役割を有している。重合促進剤としては、例えばトリエチルアミン、*n*-ブチルアミンのごとき有機アミン；アセチルアセトンでキレート化したアセチルアセトンアルミニウム、チタニウムアセチルアセトナート、クロムアセチルアセトナートのごとき金属アセチルアセトナート；オクチルスズ、塩化第二錫などの錫化合物が好適に用いられる。重合促進剤の含有量は、モル比
- 10 で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.0005～0.1モルであることが好ましい。また感光性組成物中の重合促進剤の含有量は0.01～10重量%であることが好ましく、さらに好ましくは0.05～10重量%である。

- 本発明で使用される溶媒である有機溶剤は、含有させることが好ましい成分である。前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドが加水分解するときが発生するアルコール自体が溶媒となるので特別に添加しなくてもよい場合がある。しかし、通常は、被覆の形成方法の種類によって適した溶媒が使用される。被覆の形成方法としては、キャスト法、ディップコート法、グラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法などが
- 20 好適に使用される。これらのうち、キャスト法やディップコート法で用いられる有機溶剤は蒸発速度の大きな溶媒が好適である。すなわち、溶媒の蒸発速度があまりにも小さいと塗膜の乾燥が遅いので液の流動性が高くなり均一な塗膜が形成されない場合があるので、例えばメタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、*tert*-ブトキシアルコールなどのような蒸発速度の大きいアルコール
- 25 溶媒が好適に使用できる。

一方グラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法に使用される有機溶剤は、以下に述べるような、蒸発速度の極めて小さい溶媒が好適である。その理由は蒸発速度が大きすぎる溶媒では、十分にレベリングが行われないうちに溶媒

- が蒸発してしまうため塗布外観が汚くなる場合があるからである。溶媒の蒸発速度は、酢酸ブチルのそれを100とした相対蒸発速度指数で、一般的に評価されている。この値が40以下の溶媒は極めて小さい蒸発速度をもつ溶媒として分類されており、このような溶媒がグラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法
- 5 ト法の有機溶媒として好ましい。例えばエチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、セロソルブアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ヘキシレングリコール、ジエチレングリコール、エチレングリコール、トリプロピレングリコール、ジアセトンアルコール、テトラヒドロフルフリルアルコール、などが挙げられる。
- 10 本発明に使用されるコーティング液の溶媒としては、上記のような溶媒の1種が望ましいが、コーティング方法やコーティング液の特性に応じて上記の溶媒を複数混合して用いても構わない。
- 溶媒の含有量は、モル比で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して0.3～5
- 15 倍が好ましく、より好ましくは0.5～3倍である。感光性組成物中の溶媒含有量は0～50重量%であることが好ましく、さらに好ましくは0～20重量%である。
- 本発明における感光性組成物には、諸種の添加剤を加えてもよい。例えば膜厚みを大きくする膜厚増加剤、増粘剤、レベリング剤、フローコントロール剤など
- 20 がこれらの例として挙げられる。例えば、ジメチルポリシロキサンなどのシリコーン、ポリエチレングリコールなどのグリコール類を例示できる。
- 本発明における感光性組成物は最終的には光照射によってパターン形成を行う必要があるのでパターン加工性の観点からはシロキサンポリマーを有機溶媒またはアルカリ水溶液に溶解する必要がある。従って前記金属もしくはケイ素アルコ
- 25 キシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの重合度を上げすぎるとリーチングしにくくなるので加水分解条件には注意が必要になってくる。アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド、および必要に応じて加水分解触媒、光反応開始剤、重合促進剤、

水および溶媒を含有する感光性組成物は、これらを配合した後に、好ましくは、室温～50℃で30分～12時間、反応させて加水分解させることにより調製される。

本発明の感光性組成物は、重量％で表して、

- | | | |
|----|-------------------------|-----------|
| 5 | アリル基を有する金属もしくはケイ素アルコキシド | 5～95.49％、 |
| | 加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド | 1～50％、 |
| | 光反応開始剤 | 0.5～10％、 |
| | 重合促進剤 | 0.01～10％、 |
| | 溶媒 | 0～50％および |
| 10 | 水 | 3～50％ |
- を含むことが好ましい。

また、本発明の感光性組成物は、重量％で表して、

- | | | |
|----|--------------------|-----------|
| | アリル基を有するトリアルコキシシラン | 5～96.49％、 |
| | 光反応開始剤 | 0.5～10％、 |
| 15 | 重合促進剤 | 0.01～10％、 |
| | 溶媒 | 0～50％および |
| | 水 | 3～50％ |
- を含むことが好ましい。

- 本発明に用いられる基材としては、平板状、曲板状、棒状等の任意の形状のものである。基材として基材表面の反り量（基材の表面方向の単位長さ当りのその表面に垂直な方向の熱変形長さ）が小さいことが望ましい。反り量がこの範囲を越えると膜の成形過程において基板と膜が界面で剥離もしくは膜に亀裂を生じるおそれがあるので、基材の材料、寸法、形状を選ぶことが好ましい。

- また、この基材は $5 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 以下の線膨張率を有することが好ましい。その理由は、基材の線膨張率が $5 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ を超えると、例えばポリプロピレン（ $9 \sim 15 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ ）のような高い熱膨張係数を有するプラスチック基材の場合、オルガノポリシロキサン膜の成形過程において基材と膜が界面で剥離したり、膜に亀裂を生じるからである。通常の無機ガラスは $5 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ 以下の

線膨張率を有する。また基材の少なくとも表面は酸化物であることが好ましい。その理由は、もし膜と接する基材表面が酸化物でない場合、膜の成形過程において付着強度が下がり、場合によっては基材と膜が界面で剥離を生じるからである。好ましい基材の材質の例としては、珪酸塩系ガラス、ホウ酸系ガラス、リン酸系ガラス等の酸化物ガラス；石英、セラミックス、金属、シリコン、エポキシ樹脂、
5 ガラス繊維強化ポリスチレンなどを挙げることができる。金属はそのままでは膜が接合しないが、あらかじめ金属の表面を酸化剤で処理しておけば基材として使用することができる。このなかでも、コストの点からは、フロートガラス（線膨張係数： $1 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$ ）が好ましく、熱膨張係数の点からは、石英ガラス（線膨張係数： $8 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ ）、ゼロ膨張ガラス（線膨張係数： $-3 \sim 0.0 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ 、商品名：ネオセラム、ゼロデュアガラス）が最も好ましい。また集積光学素子を製造する場合には、シリコン基板（線膨張係数： $41.5 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$ ）を用いてもよい。

上記感光性組成物を、所定形状の基材例えば基板の上に $0.5 \mu\text{m} \sim 200 \mu\text{m}$ のウェット厚みに塗布して、塗膜を形成した後、その塗膜の上に所定の形状の光透過領域と光遮蔽領域のパターンを有するフォトマスクを配置し、そのフォトマスクを介して紫外線を、例えば、照射される位置での光強度が $1 \sim 200 \text{ mW}/\text{cm}^2$ になるように、1秒～30分間塗膜に照射して、フォトマスクの光透過領域に対応する露光塗膜部分を重合させ、フォトマスクの光遮蔽領域に対応する非露光塗膜部分をアルコールまたはアルカリ水溶液でリーチング（溶解除去）し、
15 その後好ましくは、 $80 \sim 350^{\circ}\text{C}$ で10分～5時間加熱することにより硬化させて、厚みが $100 \text{ nm} \sim 50 \mu\text{m}$ 、特に好ましくは厚みが $100 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の、上記フォトマスクの光透過領域パターンに一致する形状のパターン膜が被覆された物品、例えば光導波路素子、回折格子その他の光学素子が形成される。

25 前記光照射により、非露光の塗膜部分では、アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの光重合（アリル基の重合性炭素－炭素二重結合が開いて他との結合）は生じず、溶剤によりアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドは加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの加水分解物とともに溶解除去される。露光

- された塗膜部分中のアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドはその中の重合性炭素-炭素二重結合が開いて再結合することにより重合されて、溶剤に不溶となり、続く加熱処理により露光塗膜部分のアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドおよび加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの加水分解・脱水縮合反応が完成して硬化する。

- 本発明の感光性組成物は上述のように、塗布膜の一部を光照射により重合硬化させた後、光未照射部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造に用いられるが、その他に、基材と種々の表面形状を有する型材との間に感光性組成物を配置し、必要に応じてプレスし、その後に全体を光照射して重合硬化させて、その型材の表面を転写された表面形状を有する膜を基材に接着した、マイクロレンズ、回折格子、光導波路などの光学素子その他の被覆物品を製造することができる。

実施例

以下に本発明を具体的に説明する。

実施例 1

- 15 感光性組成物の調製

- ジルコニウムテトラブトキシド 7.67 g をとり、アセト酢酸エチル 3.39 g を加えて 0.5 時間攪拌した。次にこれにアリルトリエトキシシラン 12.9 g を加えて 0.5 時間攪拌した後、これに 0.06 重量%濃度の HNO_3 水溶液 3.6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、これに光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0.80 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0.032 g を加えてさらに 2 時間攪拌し感光性組成物を調製した。

- 厚み 0.5 mm で 2 cm × 2 cm の石英基板 (屈折率 1.46) をイソプロピルアルコール中で 20 分間超音波洗浄し、純水中でさらに 20 分間超音波洗浄した。これに上記感光性組成物を滴下し、スピンコートして組成物を前記基板上に均一に塗布した。これを 90℃ で 10 分間加熱して乾燥した。フォトマスク (2 cm × 2 cm の大きさでその中央に長さ 2 cm で幅が 15 μm の細長い紫外光透過部を 20 μm の間隔を隔てて平行に 2 本設けてあり、その他の部分は紫外線

- を遮蔽する。)を塗布膜面に乗せ、これを窒素雰囲気下に置き、30 cm上方の距離から5 eV (波長365 nm)の紫外線を10分間照射した。膜面における紫外線の強度は10 mW/cm²であった。この照射により、膜中の露光部分(前記紫外光透過部に対応する部分)では、アリルトリエトキシシランのアリル基が有する重合性炭素-炭素二重結合が開いてアリルトリエトキシシランの重合体(イソプロピルアルコールに非溶解)が生成された。しかし非露光部分(前記紫外遮蔽部に対応する部分)ではそのような重合体は生成されずイソプロピルアルコールに溶解性を有した。露光終了後、基板をイソプロピルアルコール中に浸漬して洗って膜の非露光部分を溶解して除去した。150℃で1時間加熱、乾燥することにより、アリルトリエトキシシランおよびジルコニウムテトラブトキシドの加水分解・脱水縮重合反応が完成して、石英基板上にそれぞれ、幅15 μm、高さ12 μmで長さ2 cmの2本の導波路コア(屈折率1.47)が20 μmの間隔を隔てて平行に配置されたリッジ型光導波路を得た。SEM(走査型電子顕微鏡)観察の結果、2つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されず、紫外線非露光部分のリーチングがきれいに行われたことがわかった。

比較例1

上記実施例1の感光性組成物の調製において使用したアリルトリエトキシシラン12.9 gに代えてトリメトキシシリルプロピルメタクリレート10 gを使用する他は実施例1と同様のモル比にて感光性組成物を調製した。

- 上記感光性組成物を、上記実施例1と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去および加熱を行ってリッジ型光導波路を得た。導波路コア(屈折率1.47)の寸法は幅15 μm、高さ12 μmであった。SEM(走査型電子顕微鏡)観察の結果、2つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が石英基板部分の面積の約5%の広さで残っていることが観察された。

実施例2

感光性組成物の調製

アリルトリメトキシシラン16.2 gに0.06重量%濃度のHNO₃水溶液3.

6 gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.8 gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32 gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

- 5 上記感光性組成物を用い、上記実施例1で非露光部分除去でのイソプロピルアルコールに代えて濃度5重量%のNaOH水溶液を用いた他は上記実施例1と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行ってリッジ型光導波路を得た。導波路コア（屈折率1.465）の寸法は幅15 μ m、高さ13 μ mであった。SEM（走査型電子顕微鏡）観察の結果、2つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されなかった。

実施例3

感光性組成物の調製

- 15 アリルトリエトキシシラン16.2 gに、テトラエトキシシラン8.3 gを加え、それに0.06重量%濃度のHNO₃水溶液3.6 gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.08 gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.03 gを加えてさらに1時間攪拌し感光性組成物を調製した。

- 20 上記感光性組成物を用い、実施例2で用いたフォトマスクの代わりにフォトマスク（2 cm×2 cmの大きさで、幅10 μ m、長さ2 cmで、間隔が10 μ mのストライプ状の紫外光透過部を約1,000個平行に設けた）を用いた他は、上記実施例2と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って回折格子を得た。回折格子の各凸部の寸法は幅10 μ m、長さ2 cm、高さ10 μ mであった。He-Neレーザより発振する632.8 nmのビームを用いて回折の状態を観察したところ、1次回折光および2次回折光がともにきれいに観察された。またSEM（走査型電子顕微鏡）観察の結果、回折格子各凸部の間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されなかった。

比較例2

上記比較例1で調製した感光性組成物を用いて、上記実施例3と同様にして、

石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って、実施例 3 とほぼ同一寸法の回折格子を得た。He-Ne レーザより発振する 632.8 nm のビームを用いて回折の状態を観察したところ、規則正しい回折光として観察されなかった。また SEM (走査型電子顕微鏡) 観察の結果、回折格子各凸部の間の石英基板部分には非露光部分残留物が、石英基板部分の面積の約 5 % にわたって所々に観察された。

比較例 3

トリメトキシシリルプロピルメタクリレート 24.8 g に 0.06 重量% HNO_3 水溶液 3.6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0.8 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0.32 g を加えてさらに 1 時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布したが、風乾している間に基板上のゾルが島状や液滴状に凝集し、平滑な塗膜として得られなかった。

比較例 4

トリメトキシシリルプロピルメタクリレート 19.8 g にテトラエトキシシラン 4.17 g、0.06 重量% HNO_3 水溶液 3.6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0.80 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0.32 g を加えてさらに 1 時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布した後、実施例 3 と同様に紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って回折格子を作製した。SEM 観察で非露光部分に残留物が観察され、He-Ne レーザーの 632.8 nm のビームを試料に照射して回折光を観察したところ明瞭な回折光は観察されず、光はぼやけたり、回折光同士がつながったりというような状況であった。

比較例 5

ビニルトリエトキシシラン 19.3 g に 0.06 重量% HNO_3 水溶液 3.6 g

を加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.8gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

- 5 上記感光性組成物を用い、上記実施例3と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射した。紫外線照射が終わった塗膜をイソプロピルアルコールでリンスすると、非露光部のみならず露光部もリーチングされてしまい、光照射しても重合しなかった。

比較例6

- 10 ビニルトリエトキシシラン15.2gにテトラエトキシシラン4.17g、0.06重量% HNO_3 水溶液3.6gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.80gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。
- 15 上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布した後、実施例3と同様に、マス킹、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って回折格子を作製した。SEM観察で露光部分以外でも膜がリーチングされているのが観察され、きれいなストライプ状のパターンは得られなかった。、He-Neレーザーの632.8nmのビームを試料に照射して回折光を観察したところ明瞭な回折光は観察されず、光はぼやけたり、回折光同士がつながったりというような状況であった。

- 25 以上のとおり、本発明によれば、感光性組成物を基板に塗布し、所定のパターンのフォトリソマスクを介して光照射した後、非露光部を有機溶媒またはアルカリ水溶液などでリーチングすれば、露光部と非露光部の境界がはっきりした精度に優れた微細パターン膜が得られ、従って耐熱性、耐水性、耐薬品性等の特性が高い、光導波路、回折格子などの光学素子として用いられるパターン膜被覆物品が得られる。

請求の範囲

1. 感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜
- 5 の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法において、前記有機金属もしくはケイ素化合物はアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドであることを特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法。
2. 前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドはアリルトリメトキシシランまたはアリルトリエトキシシランである請求項 1 に記載の方法。
- 10 3. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを含む請求項 1 または 2 に記載の方法。
- 15 4. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のテトラーもしくはトリーアルコキシド、チタンのテトラーもしくはトリーアルコキシド、ジルコニウムのテトラーもしくはトリーアルコキシドまたはアルミニウムのトリアルコキシドを含む請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の方法。
- 20 5. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、トリブトキシアルミニウム、テトラプロポキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム、テトライソプロポキシチタン、テトラブトキシチタン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランおよびフェニルトリメトキシシランからなる群より選ばれる
- 25 少なくとも 1 種のアルコキシドを含む請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の方法。
6. 前記感光性組成物は、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドお

よび前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド100重量部に対して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを1～50重量部含有する請求項1～5のいずれかに記載の方法。

5

7. 前記感光性組成物は、さらに光反応開始剤を、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド1モルに対して、0.001～0.2モルの割合で含有する請求項1～6のいずれかに記載の方法。

10 8. 前記感光性組成物は、さらに重合促進剤を、モル比で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.0005～0.1モルの割合で含有する請求項1～7のいずれかに記載の方法。

15 9. 前記感光性組成物は、さらに水を、モル比で表して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して1～20倍の割合で含有する請求項1～8のいずれかに記載の方法。

20 10. 前記感光性組成物は、重量%で表して、
アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド 5～95.49%、
加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド 1～50%、
光反応開始剤 0.5～10%、
重合促進剤 0.01～10%、
25 溶媒 0～50%および
水 3～50%
を含む請求項1～9のいずれかに記載の方法。

11. アリル基を有するトリアルコキシシランを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去することを特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法。

- 5 12. 前記アリル基を有するトリアルコキシシランはアリルトリメトキシシランまたはアリルトリエトキシシランである請求項11に記載の方法。

- 10 13. 前記感光性組成物は、さらに光反応開始剤を、前記アリル基含有トリアルコキシシラン1モルに対して、0.001～0.2モルの割合で含有する請求項11または12に記載の方法。

14. 前記感光性組成物は、さらに重合促進剤を、モル比で表して、前記アリル基含有トリアルコキシシラン1モルに対して、0.0005～0.1モルの割合で含有する請求項11～13のいずれかに記載の方法。

15

15. 前記感光性組成物は、さらに水を、モル比で表して、前記アリル基含有トリアルコキシシランに対して1～20倍の割合で含有する請求項11～14のいずれかに記載の方法。

- 20 16. 前記感光性組成物は、重量%で表して、

アリル基を有するトリアルコキシシラン 5～96.49%、

光反応開始剤 0.5～10%、

重合促進剤 0.01～10%、

溶媒 0～50%および

- 25 水 3～50%

を含む請求項11～15のいずれかに記載の方法。

17. 前記パターン膜被覆物品が光導波路、回折格子またはマイクロレンズであ

る請求項 1 ～ 16 のいずれかに記載の方法。

18. アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、光反応開始剤、重合促進剤および水を主成分とする感光性組成物。

5

19. さらに、加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む請求項 18 に記載の感光性組成物。

20. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

21. 前記加水分解性金属アルコキシドは、ケイ素のテトラーもしくはトリールアルコキシド、チタンのテトラーもしくはトリールアルコキシド、ジルコニウムのテトラーもしくはトリールアルコキシドまたはアルミニウムのトリアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

22. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、トリブトキシアルミニウム、テトラプロポキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム、テトライソプロポキシチタン、テトラブトキシチタン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランおよびフェニルトリメトキシシランからなる群より選ばれる少なくとも 1 種のアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

23. 前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドがアリルトリアルコキシシランである請求項 18 ～ 22 のいずれかに記載の感光性組成物。

24. 前記アリルトリアルコキシシランがアリルトリメトキシシランまたはアリ

ルトリエトキシシランである請求項 2 3 に記載の感光性組成物。

2 5. 上記感光性組成物が、重量%で表して、

	アリルトリアルコキシシラン	5 ~ 9 6 . 4 9 %、
5	光反応開始剤	0 . 5 ~ 1 0 %、
	重合促進剤	0 . 0 1 ~ 1 0 %、
	溶媒	0 ~ 5 0 %および
	水	3 ~ 3 0 %

を含む請求項 2 3 に記載の感光性組成物。

10

2 6. 上記感光性組成物が、重量%で表して、

	アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド	5 ~ 9 5 . 4 9、
	加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド	1 ~ 5 0 %、
	光反応開始剤	0 . 5 ~ 1 0 %、
15	重合促進剤	0 . 0 1 ~ 1 0 %、
	溶媒	0 ~ 5 0 %および
	水	3 ~ 5 0 %

を含む請求項 1 8 ~ 2 4 のいずれかに記載の感光性組成物。

- 20 2 7. 上記感光性組成物が、さらに酸触媒を 0 . 0 0 0 0 2 ~ 1 0 重量%含む請求項 1 8 ~ 2 6 のいずれかに記載の感光性組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP, 965885, A (Kansai Research Institute), 22 December, 1999 (22.12.99) & US, 6183935, A & WO, 9935536, A & JP, 11-194491, A	1-27
Y	JP, 11-338145, A (Fujifilm Olin Co., Ltd.), 10 December, 1999 (10.12.99), Par. Nos. [0044] to [0047] (Family: none)	1-27
Y	JP, 6-148880, A (Nippon Sheet Glass Company, Limited), 27 May, 1994 (27.05.94), Par. No. [0014] (Family: none)	1-27
Y	EP, 938027, A (Lucent Technologies Inc.), 25 August, 1999 (25.08.99) & JP, 11-344917, A	1-27
Y	US, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.), 21 December, 1993 (21.12.93) & JP, 5-116454, A	1-27

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not
considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing
date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is
cited to establish the publication date of another citation or other
special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other
means
"P" document published prior to the international filing date but later
than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or
priority date and not in conflict with the application but cited to
understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered novel or cannot be considered to involve an inventive
step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered to involve an inventive step when the document is
combined with one or more other such documents, such
combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 April, 2001 (03.04.01)

Date of mailing of the international search report
17 April, 2001 (17.04.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-305030, A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 21 November, 1995 (21.11.95), Par. Nos. [0011] to [0015] (Family: none)	1-27

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G03F7/075、G03F7/027、C08L83/04、C08L85/00、
G02B5/18、G02B3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ G03F7/075、G03F7/027、C08L83/04、C08L85/00、
G02B5/18、G02B3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP, 965885, A (Kansai Research Institute)、22. 12月. 1999 (22. 12. 99)、 &US, 6183935, A&WO, 9935536, A&JP, 11-194491, A	1-27
Y	JP, 11-338145, A (富士フイルムオーリン株式会 社)、10. 12月. 1999 (10. 12. 99)、 【0044】-【0047】、(ファミリーなし)	1-27

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03. 04. 01

国際調査報告の発送日

17.04.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 佳与子

2M

9019

電話番号 03-3581-1101 内線 3273

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 6-148880, A (日本板硝子株式会社)、 27. 5月. 1994 (27. 05. 94)、【0014】、(フ ァミリーなし)	1-27
Y	E P, 938027, A (Lucent Technologies Inc.)、 25. 8月. 1999 (25. 08. 99)、& J P, 11-34 4917, A	1-27
Y	US, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.)、21. 12月. 1 993 (21. 12. 93)、& J P, 5-116454, A	1-27
Y	J P, 7-305030, A (日産化学工業株式会社)、 21. 11月. 1995 (21. 11. 95)、 【0011】-【0015】、(ファミリーなし)	1-27